

# Перестраиваемый источник когерентного излучения мягкого рентгеновского диапазона на основе генерации высоких гармоник фемтосекундного лазерного излучения в газонаполненных капиллярах

Ю.А.Мальков, Д.А.Яшунин, А.М.Киселев, Н.Е.Андреев, А.Н.Степанов

*Проведены экспериментальное и теоретическое исследования перестраиваемого источника когерентного мягкого рентгеновского излучения в диапазоне длин волн 30–52 нм на основе генерации высоких гармоник фемтосекундного лазерного излучения, распространяющегося в диэлектрическом капилляре, наполненном ксеноном. Показано, что большая длина распространения лазерного импульса в капилляре позволяет за счет ионизационного сдвига спектра перестраивать длину волны генерируемых гармоник, почти полностью перекрывая рассматриваемый диапазон.*

**Ключевые слова:** генерация высоких гармоник, фемтосекундное лазерное излучение, газонаполненный капилляр.

## 1. Введение

При взаимодействии фемтосекундного лазерного излучения с интенсивностью  $\sim 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup> с газами происходит генерация высоких гармоник [1], т. е. когерентного излучения вакуумного ультрафиолетового и мягкого рентгеновского диапазонов длин волн. Получаемое в результате генерации гармоник импульсное излучение имеет фемтосекундную длительность и пространственную когерентность, что позволяет использовать его во многих приложениях, таких как дифрактометрия [2], спектроскопия с временным разрешением [3], интерферометрия [4], создание затравки для лазеров на свободных электронах [5–7].

Процесс генерации высоких гармоник принято описывать моделью, состоящей из трех стадий [1]: отрыва электрона от атома под действием лазерного поля, осцилляционного движения электрона и последующего его взаимодействия с родительским ионом. В результате взаимодействия электрона с ионом происходит генерация всплесков высокочастотного излучения. Одним из основных факторов, ограничивающих эффективность генерации высоких гармоник, является относительно небольшая длина фазового синхронизма между гармониками и лазерным излучением, связанная с аномальной плазменной и нормальной газовой дисперсиями, а также со сдвигом фазы, возникающим при прохождении лазерного импульса че-

рез фокальную область [8, 9]. В работе [10] продемонстрирована возможность достижения фазового синхронизма при использовании в качестве среды газа, заполняющего диэлектрический капилляр. Подстройка давления в капилляре позволяла компенсировать за счет дисперсии газа дисперсию, обусловленную плазмой и наличием капилляра.

Другим важным параметром излучения гармоник с точки зрения приложений является ширина спектра. Для того чтобы получить широкий спектр, удобный для спектроскопических применений, можно использовать короткоимпульсные фемтосекундные лазеры [11]. Однако даже в случае относительно длинных импульсов (с длительностью 50–100 фс) можно получить перестройку длин волн гармоник в широком диапазоне за счет существенного уширения спектра фемтосекундного лазерного импульса в сторону меньших длин волн, возникающего при распространении лазерного излучения в газонаполненном капилляре в условиях ионизации [12], а также за счет неадиабатического смещения спектра [13], наблюдаемого для очень коротких импульсов. Перестройка спектра за счет ионизационного сдвига спектра лазерного импульса в капилляре экспериментально изучалась в работе [14], где при изменении chirpa лазерного импульса длительностью 30 фс получали перестройку спектра гармоник. Однако диапазон перестройки в этой работе был ограничен, а зависимости параметров гармоник от давления остались неизученными. В недавней работе [15] было продемонстрировано увеличение выхода гармоник и уширение спектра в результате нелинейной ионизационной самокомпрессии при распространении излучения в капилляре. В работе [16] была продемонстрирована генерация суперконтинуума в диапазоне длин волн 30–50 нм в результате временного сжатия импульса при филаментации в газе высокого давления. При этом из-за сильного поглощения гармоник в газе возникает необходимость в очень резком обрыве филамента для наблюдения гармоник.

В настоящей работе проведены экспериментальное и теоретическое исследования генерации высоких гармоник фемтосекундного лазерного излучения, распространяющегося в газонаполненном диэлектрическом капилляре. Продемонстрирована возможность создания непрерывно

Ю.А.Мальков, Д.А.Яшунин, А.М.Киселев. Институт прикладной физики РАН, Россия, 603950 Н.Новгород, ул. Ульянова, 46; e-mail: yurymalkov@mail.ru

Н.Е.Андреев. Объединенный институт высоких температур РАН, Россия, 125412 Москва, ул. Ижорская, 13, стр.2; Московский физико-технический институт (государственный университет), Россия, Московская обл., 141700 Долгопрудный, Институтский пер., 9; e-mail: andreev@ras.ru

А.Н.Степанов. Институт прикладной физики РАН, Россия, 603950 Н.Новгород, ул. Ульянова, 46; Нижегородский государственный университет им. Н.И.Лобачевского (национальный исследовательский университет), Россия, 603950 Н.Новгород, просп. Гагарина, 23; e-mail: step@ufp.appl.sci-nnov.ru

Поступила в редакцию 3 марта 2014 г., после доработки – 18 марта 2014 г.

перестраиваемого источника когерентного излучения в диапазоне длин волн 30–52 нм путем варьирования давления газа в капилляре и интенсивности лазерного излучения. Исследованы также зависимости амплитуды, положения и ширины спектра гармоник от давления газа и интенсивности лазерного излучения. Показано, что сдвиг длин волн гармоник обусловлен ионизационным сдвигом спектра лазерного импульса в коротковолновую область, что при большой длине капилляра позволяет достичь существенной перестройки спектра рентгеновского излучения.

## 2. Экспериментальная схема

В эксперименте использовался титан-сапфировый лазер, генерирующий импульсы длительностью  $\tau \approx 70$  фс с энергией  $W = 0.5–5$  мДж и частотой следования 10 Гц при центральной длине волны излучения  $\lambda_0 = 795$  нм. Лазерный пучок фокусировался в вакуумной камере (остаточное давление менее  $10^{-3}$  Тор; рис.1) сферическим зеркалом с фокусным расстоянием  $F = 50$  см на вход диэлектрического капилляра длиной 3 см с внутренним диаметром 100 мкм. В капилляр через два отверстия, сделанные в стенке на расстоянии примерно 2.5 мм от его концов, напускался газ (ксенон). Диапазон давлений газа в капилляре составлял 0.1–60 Тор. Диаметр лазерного пучка в фокусе регулировался диафрагмой, меняющей диаметр исходного пучка, и подбирался таким, чтобы в капилляре возбуждалась одна основная мода капилляра  $EH_{11}$ . Интенсивность лазерного излучения  $I$  на входе в капилляр находилась в диапазоне  $(3–30) \times 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>. Отметим, что каких-либо видимых повреждений капилляра в выполненных экспериментах не наблюдалось.

Диагностика спектра высоких гармоник, генерируемых в результате взаимодействия лазерного излучения с газом в капилляре, проводилась с помощью спектрометра McPherson (модель 248/310G) с решеткой 600 штр./мм при регистрации рентгеновской CCD-камерой с обратной подсветкой Andor DO434-BN. Спектрометр помещался на расстоянии  $L \approx 100$  см от выхода из капилляра. На входе в спектрометр располагались два алюминиевых фильтра толщиной 0.2 мкм, служащих для защиты от оптического излучения лазера. В эксперименте мы измеряли спектр гармоник в диапазоне длин волн 30–52 нм. Измерение пространственного распределения гармоник лазерного излучения осуществлялось с помощью той же CCD-камеры Andor, которая в этом случае устанавливалась на место спектрометра.

В эксперименте исследовалась также модификация спектра лазерного импульса, прошедшего через капилляр. Для этого поперечное распределение интенсивности лазерного излучения на выходе из капилляра, ослабленного отражением от двух стеклянных подложек, с по-

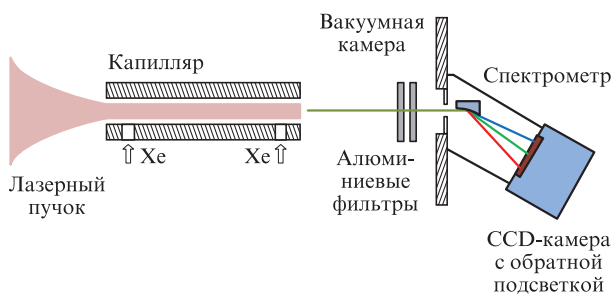


Рис.1. Схема эксперимента.

мощью линзы переносилось на входную щель калиброванного цифрового спектрометра (Solar LS, модель S150). Ширина входной щели спектрометра была существенно меньше размера переносимого изображения, поэтому фактически спектр измерялся в приосевой части лазерного пучка.

## 3. Результаты

При фокусировке лазерного излучения с интенсивностью  $I > 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup> на вход заполненного ксеноном капилляра на выходе из него наблюдался пучок рентгеновского излучения, направленный вдоль оси капилляра. Угол расходимости пучка уменьшался с ростом давления и достигал единиц миллирадиан при давлении 15–30 Тор для капилляра диаметром 75 мкм (рис.2).

На рис.3 представлены характерные спектры гармоник, полученные при различных давлениях газа и интенсивностях лазерного излучения на входе в капилляр. Отметим сложную немонотонную зависимость амплитуд ряда гармоник от давления. Вторая важная особенность – заметная перестройка положения отдельных гармоник по длине волны, которая позволила в условиях нашего эксперимента обеспечить практически полное перекрытие диапазона длин волн 30–52 нм. Последнее весьма важно для спектроскопических исследований.

Зависимости энергии и относительного сдвига спектра  $\lambda_n/\lambda_{0n}$  (где  $\lambda_{0n} = \lambda_0/n$ ) гармоник с номерами  $n = 15–25$ , генерируемых в капилляре, от интенсивности лазерного

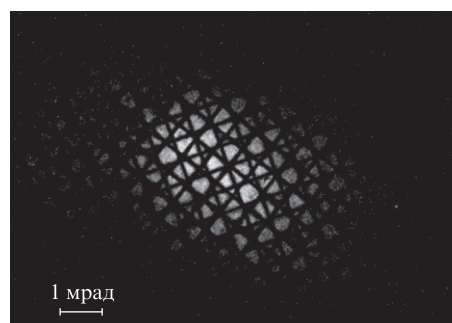


Рис.2. Угловое распределение интенсивности излучения гармоник на выходе из капилляра. Темная сетка – тень от держателей алюминиевых фильтров, служащих для блокировки оптического излучения.

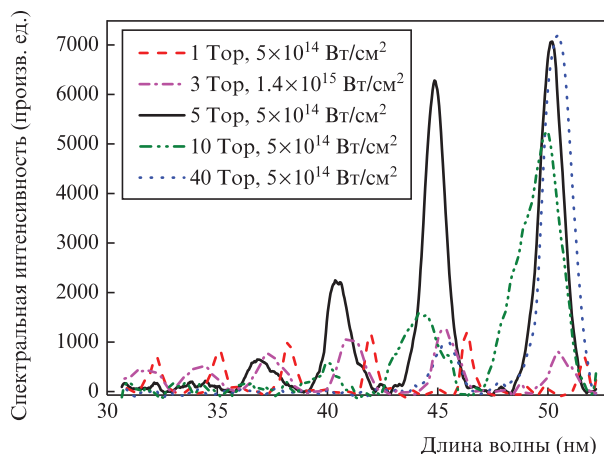


Рис.3. Спектр генерации высоких гармоник при различных давлениях газа и интенсивностях лазерного излучения.

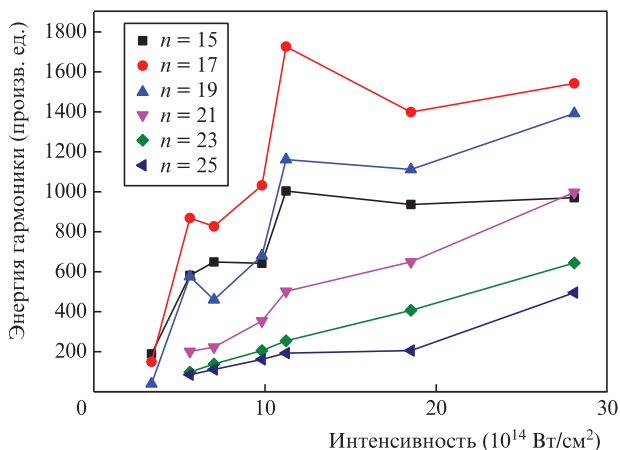


Рис.4. Зависимости энергии гармоник от интенсивности при давлении 3 Тор.

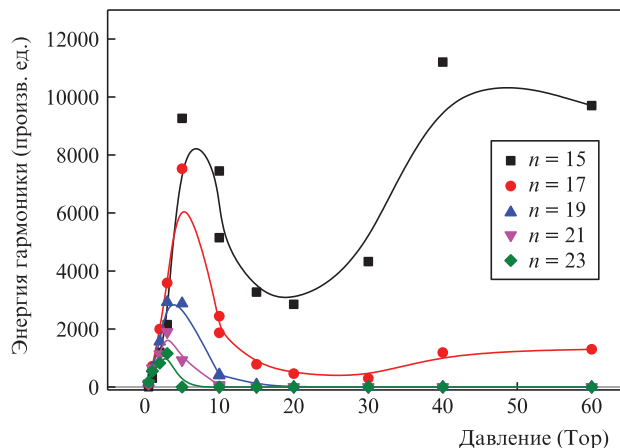


Рис.6. Зависимости энергии гармоник от давления газа при интенсивности  $10^{15}$  Вт/см<sup>2</sup>.

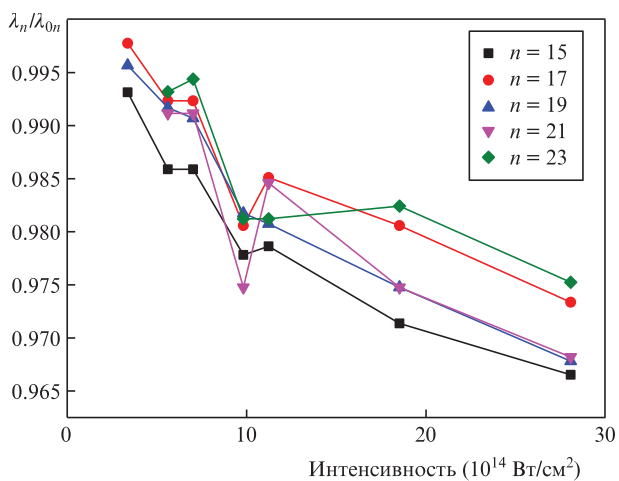


Рис.5. Зависимости относительного сдвига спектра гармоник от интенсивности при давлении 3 Тор.

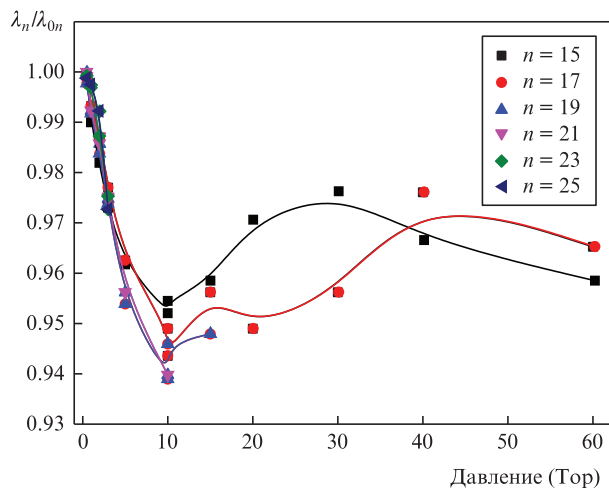


Рис.7. Зависимости относительного сдвига спектра гармоник от давления газа при интенсивности  $10^{15}$  Вт/см<sup>2</sup>.

излучения на входе в капилляр приведены на рис.4 и 5 для давления газа в капилляре 3 Тор. Для низших гармоник при небольших интенсивностях наблюдается резкий рост, а затем насыщение сигнала гармоник. Для более высоких гармоник (начиная с 19-й) видно слабое возрастание амплитуды гармоник по мере увеличения интенсивности лазерного излучения. С ростом интенсивности наблюдается также увеличение сдвига спектра гармоник. Отметим сходство зависимостей сдвига спектра от интенсивности для всех гармоник, измеряемых в эксперименте.

В эксперименте также была измерена зависимость параметров отдельных гармоник от давления ксенона в капилляре. На рис.6 представлены зависимости энергии гармоник от давления, которые демонстрируют немонотонное поведение. При малых давлениях наблюдается резкий рост энергии. В области 3–5 Тор сигнал гармоник достигает максимума, смещающегося в сторону больших давлений с уменьшением номера гармоники  $n$ . При более высоких давлениях для гармоник с  $n = 15$  и  $17$  наблюдается повторный рост эффективности, а высокие гармоники ( $n > 19$ ) исчезают.

Положения центров масс спектров излучаемых гармоник заметно и синхронно сдвигаются в сторону меньших длин волн с ростом давления (рис.7), при давлениях более 10 Тор происходит насыщение сдвига спектра.

#### 4. Обсуждение и численное моделирование

Зависимость энергии гармоник от интенсивности лазерного излучения (рис.4) может быть прокомментирована следующим образом. При низких интенсивностях (менее  $3 \times 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>), когда степень ионизации газа в капилляре невелика и возникающая плазма слабо влияет на распространение лазерного излучения, наблюдается быстрый рост низших гармоник, обусловленный резкой зависимостью вероятности ионизации от интенсивности. При большей интенсивности плазма в капилляре уменьшает коэффициент прохождения лазерного излучения через капилляр, что приводит к существенному замедлению роста амплитуд гармоник или к полному насыщению зависимостей. Увеличение сдвига спектров гармоник с ростом интенсивности лазерного излучения (рис.5) вполне укладывается в обсуждаемую ниже модель коротковолновой модификации спектра лазерного импульса, усиливающейся с увеличением интенсивности.

Качественная модель генерации гармоник была разработана ранее [10, 17] и учитывает фазовый синхронизм между лазерным излучением и гармониками, процесс ионизации, поглощение рентгеновского излучения в газе и плазме и наличие максимального номера гармоники, при превышении которого генерация рентгеновского излучения

не происходит. Нами был проведен расчет зависимостей характеристик гармоник от давления газа в капилляре, основанный на этой модели. Он показал, что, действительно, наблюдаются максимумы амплитуд гармоник в диапазоне давлений 1–10 Тор, аналогичные тем, которые мы видим на рис.6. Учет дисперсии рентгеновского излучения в газе позволяет объяснить сдвиг максимумов по давлению для разных гармоник в сторону больших давлений с уменьшением номера гармоники. Отметим, что качественное совпадение формы зависимостей амплитуд гармоник от давления с экспериментальными данными достигалось в предположении о высокой степени ионизации газа в капилляре, приводящем к сильному влиянию плазмы на дисперсию. Это утверждение соответствует оценке ионизации ксенона при используемых в эксперименте интенсивностях лазерного излучения в капилляре и результатам численного моделирования, представленным ниже.

Как известно, при распространении фемтосекундного лазерного излучения в условиях ионизации на протяженной трассе происходит существенное уширение спектра лазерного импульса в коротковолновую область [12]. Это связано с изменением частоты при распространении излучения в нестационарной среде с уменьшающимся во времени показателем преломления. Подобный эффект наблюдался экспериментально и в настоящей работе (рис.8). С ростом давления газа в капилляре спектр лазерного импульса уширяется вплоть до 700 нм. Зависимость положения центра масс спектра лазерного импульса от давления в капилляре, полученная путем обработки данных рис.8, представлена на рис.9. Видно, что при увеличении давления до 10 Тор происходит резкое уменьшение средней длины волны с последующим ее насыщением.

Лазерный импульс, распространяясь в капилляре, непрерывно генерирует высокие гармоники. Однако за счет большого коэффициента поглощения рентгеновского излучения в газе при давлении свыше нескольких торр эффективно генерируются гармоники только в части капилляра, ближайшей к его концу, где спектр лазерного излучения уже сдвинут в соответствии с результатами, приведенными на рис.9, в «синюю» сторону. Это вызывает соответствующий сдвиг спектра гармоник в сторону меньших длин волн.

Сравнение рис.7 и 9 свидетельствует о том, что зависимость сдвига спектра лазерного излучения от давления

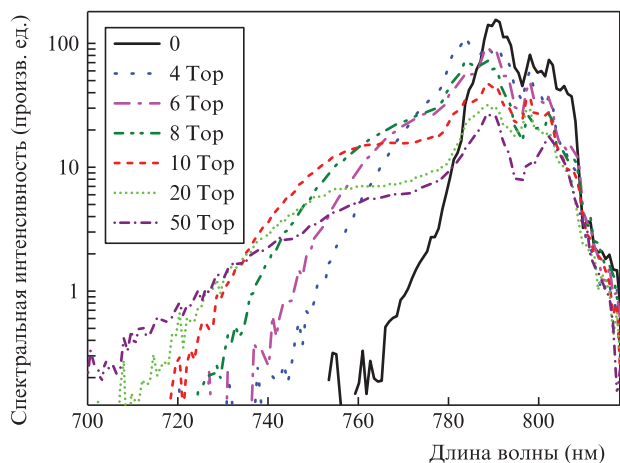


Рис.8. Спектры лазерного импульса при различных давлениях и интенсивности  $5 \times 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>.

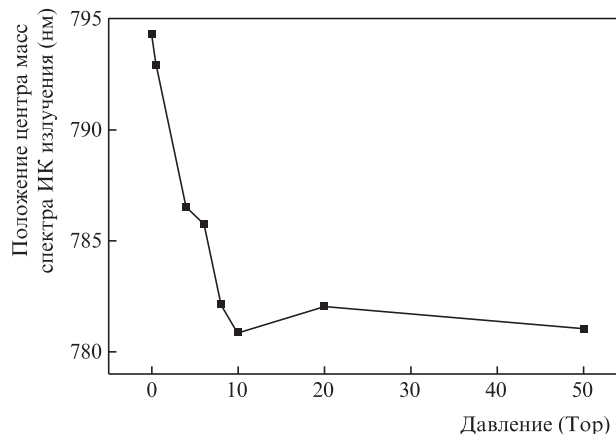


Рис.9. Сдвиг спектра лазерного излучения в зависимости от давления.

практически повторяет зависимость длин волн отдельных гармоник от давления: при малых давлениях происходит сдвиг спектра в сторону меньших длин волн, при давлении свыше 10 Тор – насыщение. Это позволяет судить о том, что наблюдаемый коротковолновый сдвиг спектров гармоник определяется именно ионизационным «синим» сдвигом спектра исходного лазерного импульса.

Важно отметить, что с ростом давления существенно уменьшается коэффициент прохождения лазерного излучения через капилляр, измеренный в эксперименте (рис.10). Это связано с потерями излучения на ионизацию и с перерассеянием его в более высокие моды капилляра, имеющие большие потери [18, 19], на неоднородностях концентрации плазмы. Уменьшение коэффициента прохождения приводит к снижению интенсивности лазерного излучения на выходе из капилляра и, в частности, к подавлению генерации высоких гармоник, наблюдаемому на рис.6. Последнее объясняется тем, что максимальная энергия кванта гармоники согласно модели трехступенчатой генерации гармоник [1] не превышает величины  $I_p + 3.17U_p$ , где  $I_p$  – потенциал ионизации атома (иона);  $U_p = e^2 E^2 / (4m_e \omega^2)$  – осцилляторная энергия электрона;  $e$  и  $m_e$  – заряд и масса электрона;  $E$  и  $\omega$  – амплитуда и частота лазерного поля. Снижение интенсивности лазерного излучения с ростом давления газа в капилляре также приводит к уменьшению

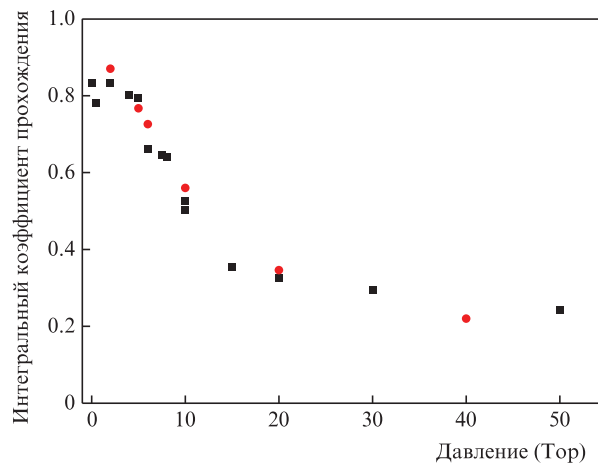


Рис.10. Экспериментальная (■) и теоретическая (●) зависимости коэффициента прохождения лазерного излучения через капилляр от давления.



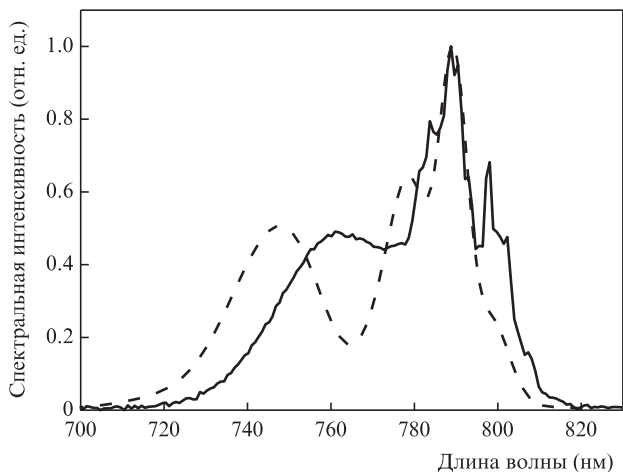


Рис.11. Экспериментальный (сплошная кривая) и теоретический (штриховая кривая) спектры на выходе из капилляра при давлении 10 Тор.

скорости ионизации газа и, следовательно, к насыщению «синего» сдвига, наблюдаемому на рис.9.

Для анализа экспериментальных данных было проведено численное моделирование распространения лазерного импульса в газонаполненном капилляре с учетом ионизации в аксиально-симметричной геометрии. Динамика образования плазмы коротким интенсивным лазерным импульсом за счет полевой ионизации описывалась системой уравнений кинетики последовательной ионизации атома (иона). Вероятность туннельной ионизации выбиралась соответствующей модели Амсова–Делоне–Крайнова. Для описания распространения лазерного излучения в нелинейной нестационарной среде использовалось волновое уравнение, учитывающее как оптическую ионизацию газа полем лазерного импульса и временную дисперсию газа, так и релятивистскую и пондеромоторную нелинейности плазмы, образованной интенсивным излучением [20–23].

В результате численного моделирования определялись коэффициент прохождения, а также временная форма и спектр лазерного импульса на выходе из капилляра. Результаты расчета интегрального коэффициента прохождения лазерного излучения через капилляр приведены вместе с экспериментальными данными на рис.10, который демонстрирует очень хорошее их соответствие.

Спектральные характеристики выходного лазерного излучения сильно зависят от деталей временной структуры и спектра исходного лазерного импульса. Экспериментально измеренный спектр лазерного импульса в отсутствие газа в капилляре (рис.8) имеет отчетливо выраженное длинноволновое крыло, которое проявляется и в спектре импульса, прошедшего через газонаполненный капилляр (рис.11, сплошная кривая). При моделировании лазерный импульс на входе в капилляр имел гауссову форму и, следовательно, симметричный спектр с шириной на полувысоте, соответствующей ширине спектра исходного измеренного импульса. Результаты моделирования спектра импульса, прошедшего через газонаполненный капилляр, показаны на рис.11 для давления газа 10 Тор. Полученный в расчетах спектр прошедшего излучения неплохо воспроизводит образование «синего» крыла спектра, вызванного в основном ионизацией газа в капилляре.

## 5. Выводы

Нами были проведены экспериментальное и теоретическое исследования когерентного источника в диапазоне длин волн мягкого рентгеновского излучения (30–52 нм) на основе генерации гармоник фемтосекундного излучения титан-сапфирового лазера, распространяющегося в диэлектрическом капилляре, заполненном ксеноном. Несмотря на относительно большую длительность лазерного импульса, за счет изменения его энергии и давления газа удалось получить источник мягкого рентгеновского излучения, перестраиваемый практически непрерывно в рассматриваемом диапазоне длин волн. Перестройка спектра гармоник определяется ионизационным сдвигом спектра лазерного излучения из-за большой длины капилляра, что подтверждается как экспериментальными измерениями, так и выполненным численным моделированием распространения интенсивного лазерного импульса в капилляре.

Работа выполнена при поддержке программы Президиума РАН «Экстремальные световые поля и их приложения».

- Lewenstein M., Balcou P., Ivanov M.Yu., L'Huillier A., Corkum P.B. *Phys. Rev. A*, **49**, 2117 (1994).
- Sandberg R.L., Paul A., Raymondson D.A., Hädrich S., Gaudiosi D.M., Holtsnider J., Ra'anan I.T., Cohen O., Murnane M.M., Kapteyn H.C. *Phys. Rev. Lett.*, **99**, 098103 (2007).
- Wörner H., Bertrand J., Fabre B., Higuier J., Ruf H., Dubrouil A., Patchkovskii S., Spanner M., Mairesse Y., Blanchet V. *Science*, **334**, 208 (2011).
- Descamps D., Lyngå C., Norin J., L'Huillier A., Wahlström C.-G., Hergott J.-F., Merdji H., Salières P., Bellini M., Hänsch T. *Opt. Lett.*, **25**, 135 (2000).
- Lambert G., Hara T., Garzella D., Tanikawa T., Labat M., Carre B., Kitamura H., Shintake T., Bougeard M., Inoue S. *Nat. Phys.*, **4**, 296 (2008).
- Togashi T., Takahashi E.J., Midorikawa K., Aoyama M., Yamakawa K., Sato T., Iwasaki A., Owada S., Okino T., Yamanouchi K. *Opt. Express*, **19**, 317 (2011).
- Ardana-Lamas F., Lambert G., Trisorio A., Vodungbo B., Malka V., Zeitoun P., Hauri C. *New J. Phys.*, **15**, 073040 (2013).
- L'Huillier A., Schafer K., Kulander K. *Phys. Rev. Lett.*, **66**, 2200 (1991).
- L'Huillier A., Li X., Lompré L. *J. Opt. Soc. Am. B*, **7**, 527 (1990).
- Durfee III C.G., Rundquist A.R., Backus S., Herne C., Murnane M.M., Kapteyn H.C. *Phys. Rev. Lett.*, **83**, 2187 (1999).
- Goulielmakis E., Schultze M., Hofstetter M., Yakovlev V., Gagnon J., Uiberacker M., Aquila A., Gullikson E., Attwood D., Kienberger R. *Science*, **320**, 1614 (2008).
- Babin A., Kartashov D., Kiselev A., Lozhkarev V., Stepanov A., Sergeev A. *Appl. Phys. B*, **75**, 509 (2002).
- Shin H.J., Lee D.G., Cha Y.H., Hong K.H., Nam C.H. *Phys. Rev. Lett.*, **83**, 2544 (1999).
- Froud C.A., Rogers E.T., Hanna D.C., Brocklesby W.S., Praeger M., de Paula A.M., Baumberg J.J., Frey J.G. *Opt. Lett.*, **31**, 374 (2006).
- Butcher T., Anderson P., Chapman R., Horak P., Frey J.G., Brocklesby W. *Phys. Rev. A*, **87**, 043822 (2013).
- Steingrube D., Schulz E., Binhammer T., Gaarde M., Couairon A., Morgner U., Kovačev M. *New J. Phys.*, **13**, 043022 (2011).
- Rogers E.T., Stebbings S.L., de Paula A.M., Froud C.A., Praeger M., Mills B., Grant-Jacob J., Brocklesby W.S., Frey J.G. *J. Opt. Soc. Am. B*, **29**, 806 (2012).
- Marcatili E., Schmeltzer R. *Bell System Tech. J.*, **43**, 1783 (1964).
- Cros B., Courtois C., Matthieussent G., Di Bernardo A., Batani D., Andreev N., Kuznetsov S. *Phys. Rev. E*, **65**, 026405 (2002).
- Andreev N., Nishida Y., Yugami N. *Phys. Rev. E*, **65**, 056407 (2002).
- Andreev N., Cros B., Gorbunov L., Matthieussent G., Mora P., Ramazashvili R. *Phys. Plasmas*, **9**, 3999 (2002).
- Andreev N., Cassou K., Wojda F., Genoud G., Burza M., Lundh O., Persson A., Cros B., Fortov V., Wahlstrom C. *New J. Phys.*, **12**, 045024 (2010).
- Eremin V., Malkov Yu., Korolikhin V., Kiselev A., Skobelev S., Stepanov A., Andreev N. *Phys. Plasmas*, **19**, 093121 (2012).